PU8426

⑲ 日本国特許庁(JP)

⑪特許出願公開

⑩公開特許公報(A) 平1-200914

@Int. Cl. 4

識別記号

广内整理番号

❸公開 平成1年(1989)8月14日

B 29 B 15/12 6804-4F 6363-4F

請求項の数 10 (全10頁) 案杳請求 未請求

樹脂の含浸法 60発明の名称

> 昭63-255388 ②)特

22出 顖 昭63(1988)10月11日

優先権主張

②昭62(1987)10月20日③日本(JP)③特願 昭62-265059

明 者 個発

服 敏 裕 部

愛知県名古屋市東区砂田橋 4-1-60 三菱レイヨン株式

個発 明 者 後 孟

愛知県名古屋市東区砂田橋 4 – 1 –60 三菱レイヨン株式

会社内

@発 明 者

理

淹

藤

郁 朗 愛知県豊橋市牛川通4-1-2 三菱レイヨン株式会社内

東京都中央区京橋2丁目3番19号

三菱レイヨン株式会社 何出 願 弁理士 吉沢 敏夫

瞡

1. 発明の名称

倒代

樹脂の含浸法

2.特許請求の範囲

- 樹脂層上にシート状物を重ね次いで該樹脂 をシート状物中に含畏せしめるロール含浸法 に於て、特定の凹凸パターンを有するプレス ロールを用いることを特徴とする樹脂の含畏 法。
- 特定の凹凸パターンが直線、曲線又はその 両者によつて囲まれた凸部領域を有する凹凸 パターンであることを特徴とする請求項1 記 数の含浸法。
- 3. 凸部領域の面積がプレスロール表面積の20 ~908である凹凸プレスロールを用いると とを特徴とする請求項1記載の含浸法。
- 1本以上の凹凸パターンプレスロールを、 凹凸パターンプレスロールのみ、もしくは従 米のプレスロールと併用して含及を行りこと を特徴とする請求項1記数の含浸法。

- 5. シート状物がトウ状物の引き搠をシートで あることを特徴とする請求項1記載の含役法。
- シート状物が機物であるととを特徴とする 請求項1記載の含浸法。
- シート状物が炭素繊維から成ることを特徴 とする請求項1記畝の含没法。
- 樹脂の含浸に際し炭素繊維から成るシート 状物に通電発熱せしめることにより樹脂の流 動化とシート状物の昇温を促進せしめること を特徴とする請求項フ記載の含浸法。
- 請求項1記載の含浸法で得られたプリプレ
- 開水項9 記載のプリプレグから得られた敬 附件。
- 3.発明の詳細な説明

<産業上の利用分野>

本発明は、根維強化プラスチックの製造、将 にシート状の強化級維とマトリックスである樹 脂とから成る平板状材料の製造に於ける新規な 樹脂含受法に保るものである。

く従来の技術及び発明が解決しようとする課題> 繊維強化プラスチック(以下FRP)の1つ の形態、或はFRPを得るための中間材料の形 態として強化機能のシート状物に樹脂を含浸せ よめた構造がある。

上記の中間材料は、一般にプリプレグとして 知られているもので、本発明は主として、この プリプレグの製造に於ける樹脂の含没方法に保 るものである。

との分野に於ける樹脂の含浸は、樹脂が熱硬化性或は可塑性であるとに拘らず共通する要素は、溶剤又は加熱等の手段によつで樹脂の流動化を行い根維層内に樹脂を含浸せしめることであり、現在最も多く採用されている代表的な樹脂含浸法は加熱により樹脂の流動化を行うホットメルト法である。

具体的には、第8図に示す如く剥離紙(24)上に樹脂を均一に塗布した樹脂フィルム(25)に強化繊維から成るシート状物(26)を積溜し、加熱ロール(27)及びプレスロール(28)によりシート

である。

このため従来のロール含浸法に於ては粘度を 出来るだけ下げること、プレスロールを用いて 徐々に機維層に樹脂を含浸せしめることが基本 とされてきた。したがつてプリプレグの生産速 度はシート状物の繊維層内への樹脂の含浸速度 で準速され従来のロール含浸法は問題があつた。

さらに従来のロール含浸法では低粘度状態を 技時間維持するととが必要であり、特に熱硬化 性樹脂をマトリックスとするアリアレグの製造 に於ては硬化反応の進行に留意する必要があり 樹脂組成を制約する要因の1つであつた。

本発明は、前述の如き従来のロール含没技術の基本的欠点、即ち級維鮮中への樹脂の含浸速度が低く生産速度を高めようとする時樹脂の絞りだしを生じ高い生産速度が得られないこと、及び長時間加熱に起因する諸問題を解決しようとするロール含没法の改良技術に係る発明である。

く課題を解決するための手段>

状物中に樹脂が含拠されたアリプレグ (29)を得よりとするもので、この様な含設法を採用したアリプレグ 製造設備は例えばカリフォルニアグラフアイト マシン Inc・・(カナダ)或はカラシエAO(スイス)などから発表されている。

この現象は被含浸物であるシート状物(26)を 构成する機能の缺径が小さい程、繊維の方向が シート状物の方向と一致した構造である程、根 維圏の厚さが厚い程或は樹脂粘度が高い程順署

本発明の要官は、樹脂層上にシート状物を重 ね次いで該樹脂をシート状物中に含浸せしめる ロール含浸法に於て、特定の凹凸パターンを有 するプレスロールを用いる樹脂の含浸法にある。

本発明を図面によつて説明する。

第1図は本発明の特定の凹凸バターンを有するプレスロールを用いる樹脂の含要法を示す模式図である。

利離紙上に適布された樹脂フィルム (1)上に 強化繊維から成るシート状物 (2) が積度され、 さらにその上部に剥離フィルム (3) で被覆され た積層体は、加熱ドラム (4) 表面で加熱され樹脂が流動化された時点でプレスロール (5-1) によりシート状物 (2) の複雑層に樹脂が含浸される。 従来技術においては、プレスロール (5 -1) 表面は平滑なプレスロールで あるが本発明に於ては表面に特定の凹凸バター ンを有するロールであるととに特徴がある。

との凹凸のある プレスロールは(5-1) 蚊は (5-2)、(5-3)・・・と複数本の併用さらに

は平滑なアレスロールと併用して用いるととも 出来る。本発明の基本的要件である凹凸のある アレスロールについて以下に説明する。

その結果、最も好ましい凹凸バターンは直線、 曲線或はその両者によつて囲まれた凸部の領域 を持つバターンであるとの結果を得るに至つた。 との様を凹凸バターンを第2図以下に例示する が本発明のバターンはこれらの例示のみに限定 されるものではない。

第2図は直線によつて囲まれた凸部の領域を持つ凹凸パターンの代表例の平面図(第2-a図)及び 第2-a図における A-Aが断面の断面図(第2-b図)である。また図中矢印は、

したがつて、凹凸パターンの大きさは凹凸のあるアレスロールの直径、ロールの材質、シート状物の圧縮特性等によつて決められるべきであるが例として示せば直径100m以上のアレスロールに於てロールの材質としてゴムを使用する時には凸領域のロール周方向の投大長は8

凹凸のあるアレスロールの周方向に一致する。 との例示パターンに於ては直線によつて囲まれ た変形の凸部の領域を有するものである。

第 3 図は、曲線によつて囲まれた凸部の領域が楕円形状を有する凹凸パターンの平面図である。

第4図は、凸部が直線で囲まれた他の1例の 平面図であり、屈曲した凸部を有する例示であ り図中矢印は何れも凹凸のあるプレスロールの 周方向と一致する。

特別昭 5 7 - 1 9 5 6 1 9 号 (特公昭 5 9 - 1 0 2 9 5 号) 公報に記載のプリプレグシートの製造法に於て、周方向に連続溝を有する筋合・ロルを用いてランダムマット状物に樹脂を含むしているが、本発明に於て用いられる凹凸パターンは第 2 ~ 4 図に於て例示した如く、凹凸のあるとは第 2 ~ 4 図に於て例示した如く、迎続であるとはの は 数 数 数 の か あ と は 数 数 数 の か た し は 出来でも 数 数 離 の 例 版 去 即 ち 絞 り だ し は 出来でも 数 数 離 層 へ の 段 去 即 ち 絞 り だ し は 出来でも 数 数 離 層 へ の 段 去 即 ち 絞 り だ し は 出来でも 数 数 離 層 へ の 例 版

~10m以下であることが好ましい。

但し、後述する様に第2図以降に示した本発明のパターンを使用して繊維層に樹脂を含浸した後に、主としてプレスロールの周方向に連続した凹部を有する凹凸のあるプレスロール(例えば周方向に孤つて定ピッチの薄を有する筋ロール)を用いることを制約するものではない。

次に凹凸のあるプレスロールの全周面積に占める凸部の面積の割合(以下凸部面積比)は、

被含穀物であるシート状物の厚さ、含穀された ・シート状物体務にしめる樹脂体殻の比率(以下 樹脂含量 も)、樹脂粘度等により決定される が最も重要な囚子は樹脂含量である。一例とし で、シート状物が炭素機維トウを引揃えて得た もので、目付が1508/㎡であつて、合長す べき樹脂が10 ps(100℃) のエポキシ樹脂で ある場合の樹脂含量と凸部の最適面積比を実験 により求めると第る図に示す如く樹脂含量の増 大に伴つて凸部面積比を下げることが必要であ る。凸部面積比が大きすぎる場合には、凹凸の あるプレスロールによる樹脂の絞り出しを生じ、 小さすぎる場合にはシート状物の厚さ方向への 樹脂の流れを促進せしめる圧力が発生せず前記 に説明した如き本発明の凹凸のあるプレスロー **ルの作用効果が期待できない。 FRPの製造に** おける樹脂含量はおよそ20~70%であり、 この分野に於ける凹凸のあるプレスロールの好 ましい凸部面徴比は20~90%、好ましくは 30~80%である。

凹凸のあるプレスロールの使用法について説明 する。

第1図に於て、プレスロールが本発明の凹凸 のあるプレスロール1本の状態(プレスロール 5 - 2 , 5 - 3 ・・・ 及び 5 - 4 が存在しない状 態)では含浸されるべき樹脂は繊維層内に局部 的な含炭が行われており必ずしも全ての部分に おいてシート状物が含没状態にはないプリプレ グが得られる。との含恐状態はシート状物の長 手方向、巾方向に空気の通過可能な流路が存在 しており脱気不要のプリアレグの構造として好 ましいものである。一般に、特に無硬化プリア レグを使用して徴燈体を製作する時、積層間に 介在する空気を除去するために積層ごと取は数 **積 届 ど と に 真 空 パック に より 脱 気 を 行 う 必 要 が** ある。しかし積層されるアリアレグに連続した 空気流路が存在する時には脱気を省略出来る可 能性があることが指摘されている。(*Advanced Material's Technology " 1986 edited by Society for the Advancement of Material また凹部の深さは凸部によつて、シート状物の厚さ方向に貫通して流された樹脂を捕捉しりる体積を持つことが必要であり、一例を示せば凹部の断面が第2図bに示された三角形である場合、その深さは凹部巾の Q 6 倍以上であればよい。

以上に詳述した本発明の凹凸のあるアレスロールはロール表面に直接特定のパターンを有する状態として説明したが、同様なパターンを有するパターンペルトとして用いることも出来る。 との時には樹脂流れの方向転換をより確実に行ってとが出来る特徴がある。

また凹凸のあるプレスロールのプレス圧力は 実験結果によると凹凸のあるプレスロールの材質、樹脂粘度、繊維層の厚さ及び樹脂含量等に より最適位が異なるが、線圧としておよそ 0.5 ~80 kg/cm、好ましくは 5 ~ 40 kg/cm 程度が 適当である。

以上に本発明の凹凸のあるアレスロールの樹脂含砂作用について説明したが、次にこの様な

and Press Eng. pages 480~490)

凹凸のあるアレスロールは、第 1 図に示される様に、複数本の凹凸のあるアレスロール酸は 平梢なアレスロールを含む従来のアレスロール と併用した含要法として利用される。

例名は第1回にたっていく5-11ロール(5-11ロール(5-11ロール(5-11ロール(5-11ロール)を一名のロールのではでは、10回のロールのではでは、10回のロールのでは、10回のロールのでは、10回のロールのでは、10回のでは、1

ール含浸法に見られる樹脂の絞り出しはシートの移動速度が高い場合でも発生せず高速度の樹脂含浸が可能となる。この様に本発明になる発明の凹凸のあるプレスロールは単独でも改せても使用することが可能であるが、何れの場合に於ても含浸を目的としてプレスロールを使用する時には含浸の最初に凹凸のあるプレスロールが用いられることが必要である。

次に本発明の含費法に用いられるマトリック

との樹脂の流れ速度が最もかい離しており従来 のロール含浸法では最も樹脂の絞り出しを生じ やすくまた繊維の配向を乱しやすい。しかし本 発明の含浸法によれば絞り出しと機維配向の乱 れを同時に解決しりるものである。

また本発明の含浸法は前述の如く局部的にシート状物を拘束しつつ含浸を行うためシート状物が 機物或は無配向の機能の集合体である不磁布状のものにも適応が可能である。

次に本発明の含浸法が利用されるシート状物について説明する。

シート状物として数も多く使用される形態は トゥ状物を引摘えシート状とした所謂一方向シートであり、この一方向シート含浸に於て本発明の含浸法の特徴が特に発揮される。

即ち、一方向シート状物に於ては機機層の厚 さ方向と級難の長手方向(シートの長手方向)

上せしめるととができる。

従来の技術、即ちシート状物の下におかれた 樹脂を下部より加熱して樹脂の流動化を計る方 法に於ては糠維剤での繊維による吸熱による樹 脂温度の低下即ち樹脂粘度の増加が生じ特に厚 手の椒維剤を有するシート状物の含浸に問題が あつた。

これに対し繊維を直接発熱せしめる通電加熱による樹脂含浸法では繊維的全体が所定の温度に設定出来るため繊維層内での温度勾配がなくしたがつて含浸に伴う樹脂の粘度増加は生じな

したがつて凹凸のあるプレスロールを使用する本発明の含浸法と繊維層の通電加熱法を組合せることにより繊維層の厚さが厚いシート状物含浸に於ても関脂の高速含没が可能である。

また、 椒維を直接加熱するため熱ロスが小さく、 急速に加熱することが可能であり高速含没の補助手段として好ましい加熱方式である。

通電により発熱するシート材料としては現在

のところ炭素酸粧があり実験結果によると通電 - 方向に存在する機維の30(重量)多以上好ま しくは60(重量)の以上が炭素機維である時、 シート状物の温度制御が容易でありシート状物 として好ましい構成である。

シート状物が炭素繊維から成る場合、交流または直流の恒流を通電することにより炭素繊維は窓温~500℃程度まで加熱することが可能であり生産速度或は樹脂条件により温度を適宜調整し樹脂の含浸性をコントロールする。 尚 、樹脂を含浸させるに際して炭素繊維を通電加熱すると同時に樹脂を従来の方法で加熱し樹脂粘度の低下を計ることは何ら問題ではない。

この様な通電加熱を併用する樹脂含浸法を模式図として第7図に示す。

この図では、供給されたシート状炭素機維(11) はロール電極(1)を介することによりフィルム 電極(11)との間で電源10により印加され昇温 した後に、剥離紙上に樹脂を逸布した樹脂フィ ルム(12)と重ね合わされ張力発生ロール(15)上

プレグを十分に冷却するととが可能となる。 このためには電極との接触長は、 3 0 0 m以上であることが好ましい。 但し、この値は帯状電極の構成により定まるものであり、特に限定するものではない。

なか、炭素繊維に通電・加熱しながら樹脂含 没を行なり方法は特別的49-81472号公 報に記載されているが好ましい電極の形態には 貫及しておらず、又特に繊維層の厚いシート状 物の含没法に於ける加熱効果を期待する示唆は ない。

(突施例)

以下、本発明を突施例によりさらに詳細に説明する。

成形板の物性測定は次の方法で行つた。

曲げ弘度、曲げ弾性率: A S T M - D 7 9 0 - 8 4 A

Vェ : アルキメデス法

: ASTM-D2334-84

央施例1

ILSS

(1) 第1 図に示された含浸設備に於いて樹脂フ

に導く。その後トップフィルム (17)で被覆された後に本発明の凹凸のあるプレスロール (18 - 1 ~ 18 - 3)で加圧含没を行ない、一旦剥離紙を剥ぎ炭素機維面を帯状電気(II)上に導く。との時、炭素機維面はフィルム電気と接触初期のでは発熱し高温状態にあるが、帯状電板面とともに移動し(電気的接点は接触初期に集中する)、冷風機(N)による冷がによりロール (21)の点では充分に冷却され帯状電極面から離れた後再び剥離紙と重ね合わさつプリプレグが得られる。

電極の取り方としてはロール電極印加、帯状 電極印加など特に限定するものではないが含受 後に接触させる電極は帯状電極であることが好 ましい。

帯状電極を用いることにより、含浸されたシート状物(例えばプリプレグ)と電極との接触 長を長くすることにより効果的な通道が可能で ありプレプレグが電極と刺離する点に於てプリ

イルム (1) として剥離紙上に 1 0 6 g/m²の 樹脂を箆布した巾 5 0 cmの樹脂フイルムを用 いシート状物として直径 8 μの炭素繊維フイ ラメントを 1 2 0 0 0 本集取した炭素 報維ト ウを 5 0 cm巾中に 1 5 0 本並列に並べた一方 向シート(2 4 0 g/m²)、剥離フイルムを して厚さ 2 0 μのポリプロピレンフイルムを 樹閣し 表面温度が 1 3 0 ℃に加熱された加熱 ロール (4) 上に供給した。

1 5 m/分で樹脂含浸を行なつたが未含浸部 及び炭素繊維の配向乱れは存在せず、高品質 の炭素繊維一方向プリアレグが得られた。

(2) 比較例

ア(1) に於て用いたプレスロールを全て平滑なロール(5-1、5-2及び5-3)とした。以外は全て(1) と同一の条件により含みを試みた。その結果、樹脂の絞り出しと樹脂流れに伴う繊維の配向乱れ、宋含浸部の存在のため使用に耐えるプリプレグは得られず使用可能なプリプレグを得るためには、プレスロール(5-1、5-2、5-3)の圧力を下でした。では、アローの合うではであり、カロ合うではであり、カロ合うではであり、カロ合うではであり、カローのではであり、カローのではであり、カローのではであり、カローのではであり、カローのではであり、カローのでは、アローのではでは、アローののでは、アローののでは、アローのでは、アローのでは、アロールを全ては、カロールを全ては、カロールを全ては、カロールを全ては、カロールを全ては、カロールを全ては、カロールを全ては、カローのでは、カロールを全ては、カロールを全ては、カロールを全では、カロールを全ては、カロールを全には、カロールを全ては、カロールを全には、カロールを発きないは、カロールを発音を表には、カロールを全には、カロールののでは、カロールののでは、カロールのでは、カロールのでは、カロールのでは、カロールのでは、カロールのでは、カロールのでは、カロールのでは、カロールのは、カロールのでは

实施例 2

直径 θ μ の炭素繊維を集束して得た無撚の 3 K の糸条を経糸及び栂糸に使用し、 2 0 0 9 / m 2 平 2 4 クロスを得た。 このクロスを 2 0 0 9 / m 2 の目付を有するエポキン樹脂フィルムと重ね

m /分近傍であり、本発明の方法を採用すると とにより著しく含受速度を向上せしめることが できた。

奖施例3

実施例 1 と同じ製造条件でプレスロール 5 - 1 (菱形パターン)を 1 本だけ用いロール含没を行なつた。 得られた プリプレグシートは全体 に未含受部が規則的に残つていたため、 これを用いて脱気なしての積層を行ない物性測定を行なった。 結果は次のとうりであり、 従来法に り得た プレアレグを脱気して積層して 得たものとの間に物性上の差はみられなかつた。

なお、物性評価用積層板の成形条件は、アリ プレグシート積層板を加熱90℃、真空1kg/cm²、 30分間の予備加熱、真空1kg/cm²、次いで 130℃、加圧5kg/cm²、60分間のオートク レーブ成型して測定に供した。 実施例1と同様な方法でパターンプレス含設を行なつた。但し、パターンロール上の凸部の型状は実施例1と同様であるが凹部の面積は実施例1より大きく、本实施例での凸部面積比32

含恐は次の様にして行なわれた。

2009/m²の炭素繊維クロスと剥離紙上に 塗布された2009/m²の樹脂フイルムを重ね 合せ、130℃に加熱された回転ドラム上に導 き、樹脂温度が110℃まで昇温した位置で第 一の凹凸のあるロール(5-1)(直径125 mm のパターンロール)次いでその直後に置かれた ピッチ1 mの 両ロール次いで平滑なロールでそ れぞれ含受を行なつた。

この時の含受速度は 1 0 m/分であり、得られた炭器複雑プリアレグは完全に樹脂含受が行なわれていた。

従来との種のクロスの含浸は樹脂の絞り出し を防止のためフラットプレス又は低圧力のロー ラー含浸が利用されるが、その含浸速度は D. 3

> 本発明の方法による 従来法によるプリプレグ プリプレグ 脱 気 か ト 脱 気 (従来法)

脱気なし 脱気(従来法)
181kg/m² 180kg/m²

曲げ弾性率 1 3 0 T/m² 1 3 2 T/m²

TLSS 9.8 kg/mm² 9.7 kg/mm² Vr 58% 57%

奥施例 4

曲げ強度

電極間距離は 2.5 m、内 C F F ウ と 樹脂 シー

「電極設定の簡略図を第7図に示した。この時、 機能関への含受性及び実施例3と同様の条件で 成型した成形物の物性は次の通りであつた。

含 畏 性 良好 未含浸部なし

曲げ強度 180 kg/m²

曲げ弾性率 1 3.0 T/m²

ILSS 1 1.5 kg/m²

v 1 60 %

実施例 5 及び比較例

12 E(炭素繊維12,000本)のCFトウを50m巾中に300本並列に送り出し、シート状となし、これを巾50m樹脂目付2009/m²に樹脂が盗布された剥雕紙上に誘導した。
OFトゥが樹脂シートに接するまえにロール電話を通過することにより電圧印加し、さらに樹脂シートと一体化した後、実施例1で用いたも

合浸性:不良、未含浸部が全表面積の 4 0 % 程度

物 性:含畏不良のため測定せず

く発明の効果>

本発明によれば、凹凸のあるプレスロールを 用いることにより含受時の樹脂の絞り出しがな く高速でのプリプレグ生産が可能となり、また 脱気不要のプリプレグシートの作成も可能とな る。さらに、炭素繊維については通電発熱法を 併用することにより従来法では困難であつた厚 手ブリプレグシートの生産が可能となる。

4. 図面の簡単な説明

第1 図は本発明の特定の凹凸パターンを有するプレスロールを用いる樹脂含茂法を示す模式 図、第2~4 図は本発明で用いられる特定のパターンを例示するための平面図及び断面図、第5 図は本発明の凹凸のあるプレスロールによる含没過程を説明するための模式図、第6 図は含砂良好となる場合の適切な凸部面積とプリア・世間含量の関係を示すグラフ、第7 図は のと同じパターンアレスロールを用いて含殺させた直後で再び電極に接触した。との時のアレス圧力は30kg/cmとした。なお供給速度は5m/分とした。

根維への樹脂含浸性及び実施例 3 と同様の条件で成型した成型物の物性は次のとうりであった。

含 没 性 良好 未含浸部なし

曲げ強度 182 kg/m²

曲げ弾性率 1 2 0 T/m²

IL88 11.6 kg/mm²

V f 60%

なか、実施例 5 と同様な条件で但して F トゥへの既圧印加は行なわず扱力発生ロールを 1 5 0 でに加熱し、上記実施例 5 と同じ条件で含拠を行なつた。

通電加熱含浸法を行なり場合の工程の一例を示 す工程図、第8図は従来のロールプレス含浸法 を説明するための参考図である。

1: 樹脂フイルム(剝離紙上に樹脂を塗つたもの)

2:シート状物

3:トップフィルム

4:加熱ロール

5: アレスロール

は、アリアレグ(樹脂含設されたシート状物)

7:シート状物

8:樹脂

9:凹凸のあるプレスロールの凸部

10:18 遊

1 1:シート状物

12:樹脂フイルム

13:樹脂フイルム送り出しロール

1 4: フリーロール

15: 張力発生ロール

16:トップフィルム送り出しロール

17:1777114

18: プレスロール

19~23:71-0-~

2 4 : 剥離紙

2,5: 樹脂フィルム

2 6:シート状物

25.7:加熱ロール

28:プレスロール

29:プリアレグ

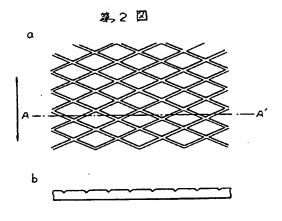
1:ローラー電極(入側)

□:ローラー軍伍(出側)

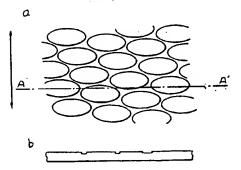
11. 带状電極

N: 冷風送風機

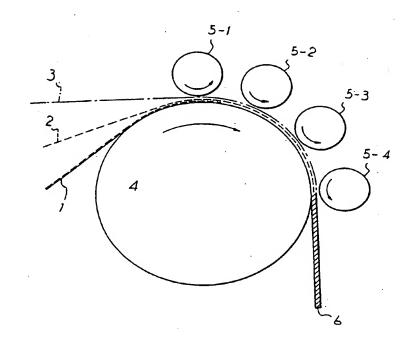
代理人 吉澤 敏 夫



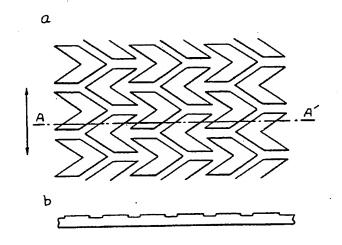
李3 図



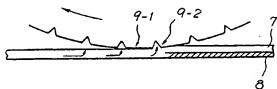
第1図



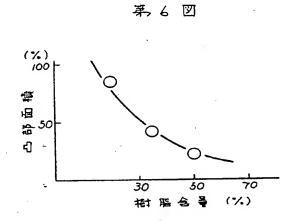
第 4 図



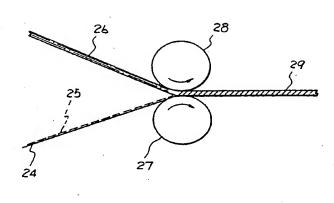




8



第8図



第 7. 図

